

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

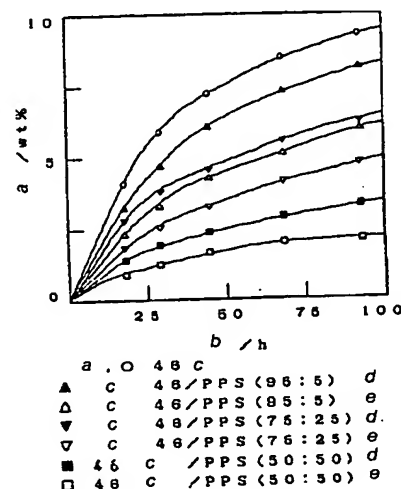
**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problems Mailbox.**

**(54) PRODUCTION OF POLYMER ALLOY**

- (11) 5-185425 (A) (43) 27.7.1993 (19) JP  
 (21) Appl. No. 4-19573 (22) 7.1.1992  
 (71) DAIICHI SEIKO K.K. (72) TAKESHI TAKAGI(2)  
 (51) Int. Cl.<sup>6</sup> B29B7/86, B29B13/02, C08L101/00 // B29K101/00

**PURPOSE:** To produce a polymer alloy by uniformly kneading and mixing a different kind of polymers under reduced pressure in a molten state without adding a compatibilizing agent or other specific blend additives.

**CONSTITUTION:** A different kind of polymers are kneaded under reduced pressure of 300Torr or less. Since enthalpy becomes large and molecular motion becomes active, mixing becomes easy and the polymers can be uniformly mixed without using a compatibilizing agent and the damage of the characteristics of the mixed polymers due to the compounding of the compatibilizing agent is prevented. In such a case that the compatibilizing agent is contained, even when a block copolymer, a graft copolymer or a random copolymer is utilized and a polymer alloy is produced by generating chemical reaction at the time of kneading in a molten state, a stable phase state can be obtained and a uniform mixed state can be obtained.



a : water absorption, b : time, c : nylon, d : atmospheric pressure, e : reduced pressure

**(54) LONG FIBER REINFORCED THERMOPLASTIC RESIN PELLET**

- (11) 5-185426 (A) (43) 27.7.1993 (19) JP  
 (21) Appl. No. 4-2889 (22) 10.1.1992  
 (71) NISSAN MOTOR CO LTD (72) HIKARI IIO  
 (51) Int. Cl.<sup>6</sup> B29B9/14, B29B9/16 // B29K105/08

**PURPOSE:** To obtain the above pellet excellent in moldability and mechanical characteristics by coating the surface of a long fiber reinforced pellet with a thermoplastic resin.

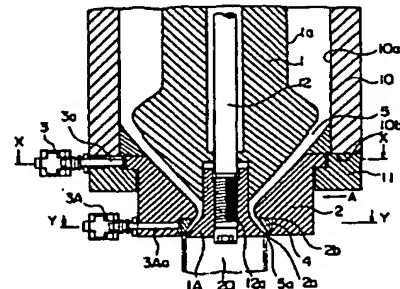
**CONSTITUTION:** In a long fiber reinforced thermoplastic resin pellet containing 30wt.% or more of a reinforcing fiber such as a glass fiber, a long fiber reinforced pellet is coated with a thermoplastic resin such as polyethylene in an amount of 1-5wt.% with respect to the total wt. of the pellet. By this method, the damage of the fiber in a molding machine can be reduced and a molded product excellent in mechanical characteristics is obtained.

**(54) METHOD AND APPARATUS FOR CONTROLLING THICKNESS OF PARISON**

- (11) 5-185428 (A) (43) 27.7.1993 (19) JP  
 (21) Appl. No. 4-5012 (22) 14.1.1992  
 (71) JAPAN STEEL WORKS LTD:THE (72) AKIRA TAMURA(1)  
 (51) Int. Cl.<sup>6</sup> B29B11/10, B29C47/92, B29C49/04, B29C49/78 // B29L22/00

**PURPOSE:** To control the thickness of a parison in the peripheral direction thereof over a wide range by moving a die and an annular disc.

**CONSTITUTION:** In a method and apparatus for controlling the thickness of a parison, a die 2 and the annular disc 4 provided to the die 2 are moved in the diameter direction A of a cylindrical head main body 10, the wall thickness of the parison 20 in the peripheral direction thereof is controlled.



1/5/2  
DIALOG (R) File 352:Derwent WPI  
(c) 2001 Derwent Info Ltd. All rts. reserv.

009575881

WPI Acc No: 1993-269427/199334

XRAM Acc No: C93-119991

Polymer alloy prepn. used as engineering plastics - by melt kneading  
polymer e.g. polyamide, polyethylene@, polystyrene, polycarbonate, etc.  
under reduced pressure

Patent Assignee: DAIICHI SEIKO CO LTD (DAII-N)

Number of Countries: 001 Number of Patents: 001

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 5185425	A	19930727	JP 9219573	A	19920107	199334 B

Priority Applications (No Type Date): JP 9219573 A 19920107

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 5185425	A		6 B29B-007/86	

Abstract (Basic): JP 5185425 A

Different kinds of polymers are melt kneaded at 300 torr or less pressure to give polymer alloy. Polymers are polyamide, polyethylene, polypropylene, polystyrene, polyethylene terephthalate, polycarbonate, mixt., etc.. As a third component, polymerisation initiator, organic peroxide, inorganic filler, already alloyed polymers, etc. are used, if required.

USE/ADVANTAGE - The alloy is used as engineering plastics such as motorcar parts materials and electronic instrument material. It gives homogeneous alloy regardless of kinds of polymers and their blending rate. It does not require compatibility giving agent. It gives stable mixing even when a compatibility giving agent is added in, when block copolymer, graft copolymer or random copolymer is used or when chemical modification generates at melt kneading.

In an example, polyphenylenesulphide and nylon 46 were blended in a ratio of 50:50. The blend was put in a chamber and melt kneaded at 0.2 torr and 320 deg.C.. Uniformly mixed polymer alloy was given.

Dwg.0/10

Title Terms: POLYMER; ALLOY; PREPARATION; ENGINEERING; PLASTICS; MELT;  
KNEAD; POLYMER; POLYAMIDE; POLYETHYLENE; POLYSTYRENE; POLYCARBONATE;  
REDUCE; PRESSURE

Derwent Class: A31

International Patent Class (Main): B29B-007/86

International Patent Class (Additional): B29B-013/02; B29K-101-00;  
C08L-101/00

File Segment: CPI

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-185425

(43)公開日 平成5年(1993)7月27日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 2 9 B 7/86		7722-4F		
13/02		7722-4F		
C 0 8 L 101/00	L S Y	7167-4 J		
// B 2 9 K 101:00				

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平4-19573

(22)出願日 平成4年(1992)1月7日

(71)出願人 592028846

第一精工株式会社

京都府京都市伏見区桃山町根来12番地の4

(72)発明者 高木 健

福岡県粕屋郡粕屋町戸原678

(72)発明者 長沼 善昭

福岡県福岡市博多区麦野5-9-27

(72)発明者 大庭 英誉

福岡県福岡市博多区諸岡4-17-9

(74)代理人 弁理士 小堀 益

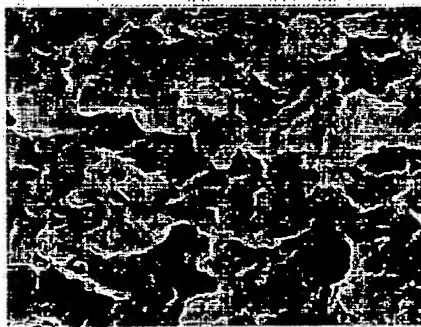
(54)【発明の名称】 ポリマーアロイの製造法

(57)【要約】

【目的】 相溶化剤や他の特定ブレンド添加物を必要とせず単純なブレンドにより異種高分子を均一に混合してポリマーアロイを製造する方法の提供。

【構成】 ポリアミド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリフェニレンサルファイド、ポリ塩化ビニル、ポリエチレンテレフタレート等、また、これらの2種以上の混合物、すでにブレンド及びアロイ化された高分子系、あるいは重合開始剤、架橋前の有機過酸化物、無機フィラーの充填剤等の第3成分を添加した系の中の異種高分子ポリマーを減圧中で熔融混練し冷却することによって、均一なポリマーアロイが得られる。

図面代用写真



写真

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 複数の異種高分子ポリマーを 300 トール以下の減圧中において溶融混練するポリマーアロイの製造法。

## 【発明の詳細な説明】

【産業上の利用分野】 本発明は、異種の高分子ポリマーをブレンドし、それぞれの特性を兼ね備えたエンジニアリング・プラスチックとしてのポリマーアロイの製造法に関する。

【従来の技術】 ポリマーアロイは高分子材料の性能向上のために、2 種類以上の高分子をブレンド又はアロイ化したもので、すでに自動車や電子機器材料をはじめ広い用途に使用されている。ポリマーアロイの性質はその相状態に大きく依存し相溶性を示す均一構造からミクロ不均一構造、マクロ不均一分離構造に至るまで多種多様の形態をとる。ポリマーアロイの機能発現には、適した均一構造からなる相状態をいかに安定に形成させかつ維持させるかが重要な問題である。しかしながら、異種高分子同士は均一に溶け合わず、また均一性は熱応力の大きさに左右されるため、相構造の制御には機械的混練に加え、ブロック、グラフト共重合によるミクロ相分離、I P N (相互浸入高分子網目) の形成、化学反応の利用、相溶化剤の添加等の方法が用いられる。とくに、相溶化剤として異種高分子同士を共有結合で結び合わせたブロック共重合体、グラフト共重合体を用いる方法は、お互いに相溶性を示さない異種高分子同士の均一性を向上させる方法として、すでによく知られており、たとえば、P S / P I 系に P S - P I ブロック共重合体、P S / P M M A 系に P S / P M M A グラフト共重合体、P S / P E 系に P S - P E グラフト共重合体、P A / P P O 系に E G M A - P S グラフト共重合体、ナイロン 6 / ポリプロピレン系にプロピレン-無水マイレン酸グラフト共重合体等、種々のブレンド系があり、いずれも相溶化剤の作用で異種高分子同士が均一に混合され、個々の高分子にない新しい性質を発現されている。しかしながら、相溶化剤を添加したとはいえ、機械的混練を必要とし、練り応力が充分でなければ均一性は得られず目的とする性能は発現しない。そのため、例えば、特開昭 6 3 - 2 0 5 3 5 8 号公報、特開平 1 - 1 7 4 5 6 2 号公報、特開平 1 - 1 8 2 3 5 9 号公報、特開平 2 - 2 2 2 4 4 9 号公報に示されているように、特定高分子材と相溶性を有し、特定の高分子材の特性を活かし、その欠点を補完する性質を有する高分子材を見出し、それを、特定条件下でブレンドすることが開示されている。

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、かかる相溶性が優れた配合高分子をブレンドするにしても、その混合条件は、きわめて限定された処理条件が必要であって、安定な混合状態を再現性良く得ることは難しい。本発明の目的は、相溶化剤や他の特定ブレンド添加物を必要とせず単純なブレンドにより異種高分子を均一に混

合してポリマーアロイを製造する方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】 本発明によるポリマーアロイの製造方法は、異種高分子同士を減圧中で溶融混練し冷却することを特徴とする。本発明を適用できる高分子ポリマーとしては、減圧中で溶融混練により成形できるものであれば、如何なるものでも適用できるが、例えば、ポリアミド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリフエニレンサルファイド、ポリ塩化ビニル、ポリエチレンテレフタレート等が挙げられ、また、これらの 2 種以上を混合しても構わない。更には、すでにブレンド及びアロイ化された高分子系、あるいは重合開始剤、架橋前の有機過酸化物、無機フィラーの充填剤等の第 3 成分を添加した系についても適用できる。配合された高分子が溶融する温度において、300 トール以下に減圧された密閉容器内でスクリー等の混練装置で混合する。良好な混合状態を得るには、1 トール以下に減圧するのが望ましい。減圧された状態ではスクリーの回転数には影響されずに異種高分子同士は均一に混合される。十分に溶融混練した試料は適当な方法で冷却することにより均一なポリマーアロイが得られる。

【作用】 本発明は異種高分子ポリマーを減圧中において溶融混練するので、エントロピーが大きくなり、分子運動が活発になるため、混合が容易となり、相溶化剤なしでも均一に混合でき、相溶化剤の配合によるそれぞれの混合高分子ポリマーの特性が損なわれることがない。また、相溶化剤を含む場合、ブロック、グラフト共重合体、ランダム共重合体を利用した場合、溶融混練時に化学反応を起こさせポリマーアロイを製造する場合においても、本発明の方法を用いれば安定な相状態を得ることが可能であり、より均一な混合状態を得ることが可能となる。

## 【実施例】

## 実施例 1

ポリファニレンサルファイド (P P S) とナイロン 4 6 (P A 4 6) を 5 0 : 5 0 に配合し密閉された容器内で 0. 2 トールに減圧し、溶解温度 3 2 0 °C にて十分に溶融混練した。比較のために、大気圧中で同様に溶融混練した。混練した試料を水中で冷却し、その破断面を電子顕微鏡で観察した。その結果を図 1 (大気圧中混練) 及び図 2 (減圧中混練) に示した。図 1 及び図 2 より、次のことが明らかである。すなわち、大気圧中で溶融混練したものは均一に混練されず、粗大な粒子の存在が認められる。それに対し、0. 2 トールの状態で溶融混練したものは、破断面の相に粒子状はなく均一に混合されている。なお、減圧中で混練したものは冷却条件に依存せず、常に均一な混合状態が得られる。次に P P S と P A 4 6 の配合比を 5 : 9 5, 2 5 : 7 5, 5 0 : 5 0 とし、前述と同様に大気圧中と減圧中で混練したものに

いて、厚さ 3mm のテストピースを作成して、50℃温水中に浸漬し、吸水率の変化を測定した。その結果を図 3 に示す。まず、減圧中で溶融混練したものは、大気圧中で混練したものとは比べ、吸水率は小さい。また、特に PA46 のみと PA46/PPS (95:5) 減圧混練を比較すると、PA46/PPS (95:5) 減圧混練は PA46 の約半分近くに吸水率が低下しており、かなり PA46 の吸水性が改善されたと判断できる。これらのことから、本発明方法の効果が有効に現れていることが分かる。

#### 実施例 2

ポリフエニレンサルファイド (PPS) 及びナイロン 66 (PA66) を 50:50 に配合し実施例 1 と同様の実験を行った。その結果、大気圧中で溶融混練 (図 4) したものは実施例 1 ほど粗大な粒子は存在せず、PPS とナイロン 66 は相溶化しやすいようであるが、0.2 トールの減圧下で溶融混練 (図 5) したものは全く粒子はなく、大気圧中溶融混練よりも更に均一に混合されている。図 6 に PPS と PA66 の配合比 50:50 のものについて実施例 1 と同様に吸水率の測定結果を示す。図 4 に示したように、PPS とナイロン 66 は大気圧中で混練しても比較的相溶性はよいが、図 6 に示すように減圧中で溶融混練したものとは比べると吸水率は大きく、本発明方法の効果が分かる。

#### 実施例 3

ポリフエニレンオキサイド (PPO) 及びナイロン 6 (PA6) を 50:50 に配合し、溶融温度を 300℃とし、実施例 1 と同様の実験を行った。その結果を図 7 (大気圧中混練) 及び図 8 (減圧中混練) に示した。図から分かるように、大気圧中で混練したものには粗大な粒子が存在している。0.2 トールの減圧下で溶融混練したものにも若干小さな粒子が存在するものの、大気圧中で溶融混練されたものに比べ、粒子が微細化されており、本発明方法の効果が有効に現れていることが分かる。

#### 実施例 4

ポリカーボネート (PC) 及びナイロン 6 (PA6) を 50:50 に配合し、溶融温度を 300℃とし、実施例

1 と同様の実験を行った。その結果、実施例 1 と同様に大気圧中で溶融混練 (図 9) したものは破断面の相に粒子が存在し、0.2 トールの減圧下で溶融混練 (図 10) したものは破断面に粒子状の相はなく均一に混合されている。

【発明の効果】本発明によって以下の効果を奏することができる。

(1) 配合する高分子ポリマーの種類、配合割合に左右されることなく、均一なポリマーアロイを得ることができる。

(2) 相溶化剤を用いなくても、異種の高分子相が均一混合したポリマーアロイ、あるいは粒子が微細に分散したポリマーアロイを容易に製造することが可能となる。

(3) 従来の高分子ポリマーの混合物のみならず、第 3 成分としての相溶化剤の添加が可能で、ブロック、グラフト共重合体、ランダム共重合体、化学変性等にも適用できる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図 1】 第 1 の実施例に対する比較例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

【図 2】 第 1 の実施例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

【図 3】 第 1 の実施例によって得たポリマーアロイの吸水率を示す。

【図 4】 第 2 の実施例に対する比較例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

【図 5】 第 2 の実施例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

【図 6】 第 2 の実施例によって得たポリマーアロイの吸水率を示す。

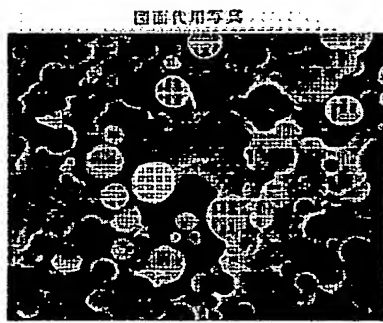
【図 7】 第 3 の実施例に対する比較例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

【図 8】 第 3 の実施例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

【図 9】 第 4 の実施例に対する比較例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

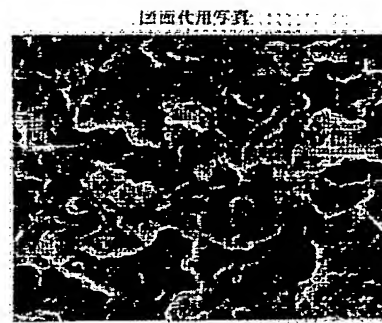
【図 10】 第 4 の実施例によって得たポリマーアロイの破断面を示す電子顕微鏡写真である。

【図1】



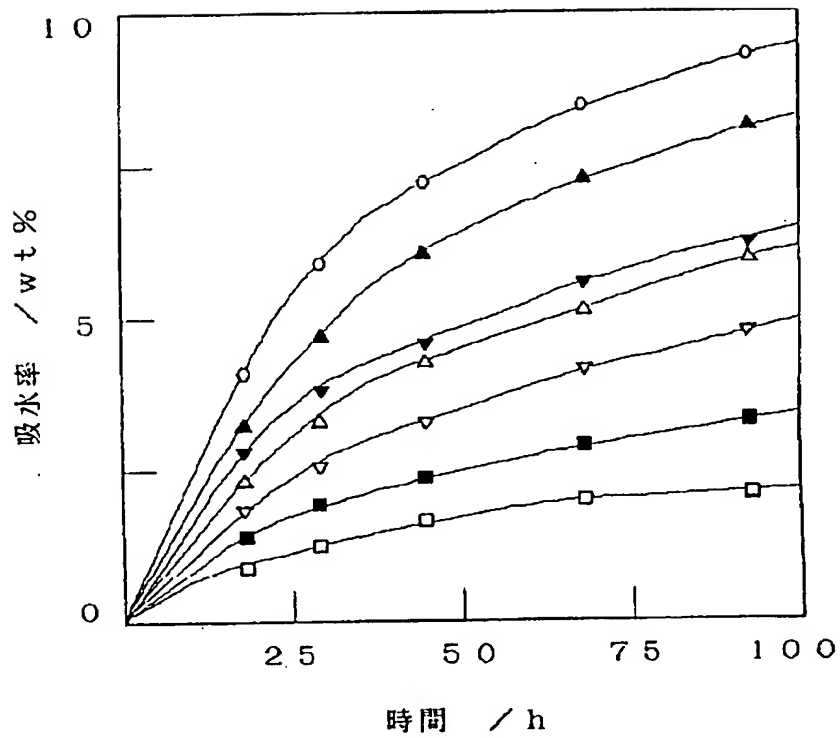
写真

【図2】



写真

【図3】



吸水率, ○ 46ナイロン

▲ ナイロン46/PPS (95:5) 大気圧

△ ナイロン46/PPS (95:5) 減圧

▼ ナイロン46/PPS (75:25) 大気圧

▽ ナイロン46/PPS (75:25) 減圧

■ 46ナイロン/PPS (50:50) 大気圧

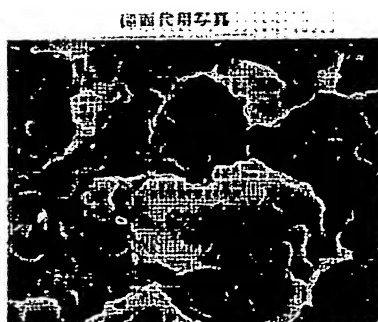
□ 46ナイロン/PPS (50:50) 減圧

【図4】



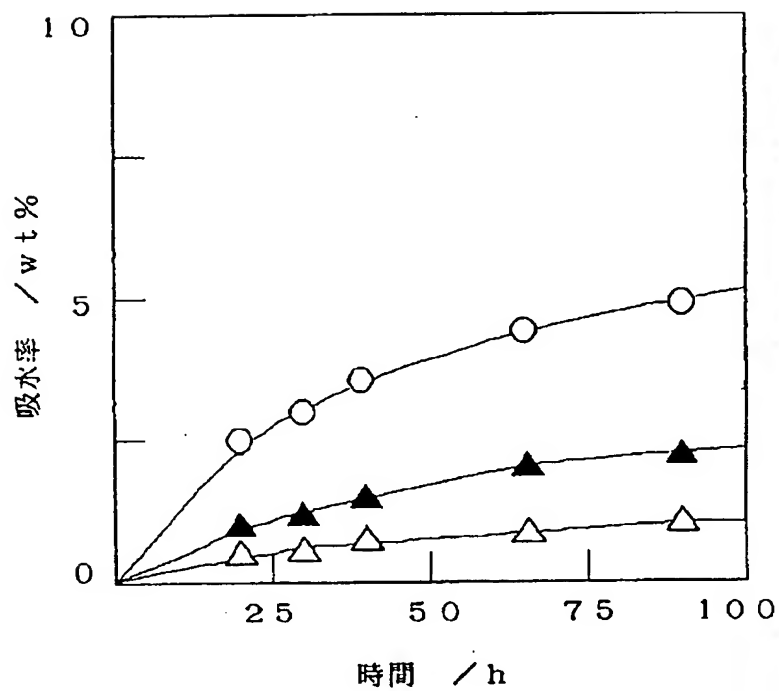
写真

【図5】



写真

【図6】

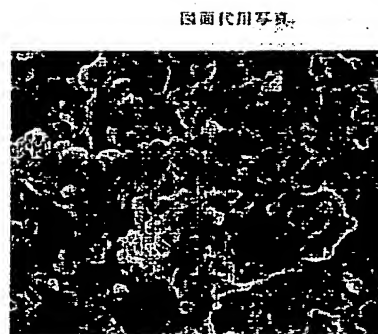


吸水率。○ 66ナイロン

▲ 66ナイロン/PPS (50:50) 大気圧

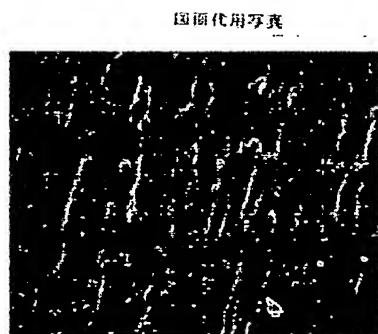
△ 66ナイロン/PPS (50:50) 減圧

【図8】



写真

【図10】



写真



【図7】

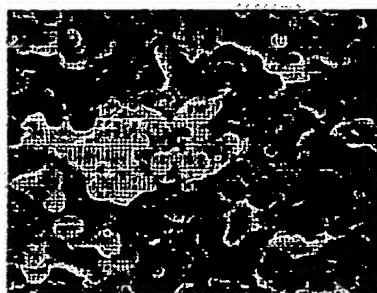
図面代用写真



写真

【図9】

図面代用写真



写真